

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant(s): Satoshi NAKAGAWA; Kazuyoshi TAKEUCHI; and Yoshiaki NAGARA
Serial No.: TBA Group Art Unit: TBA
Filed: Herewith Examiner: TBA
For: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE
Customer No.: 27123

CLAIM TO CONVENTION PRIORITY

Mail Stop Patent Application
Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

In the matter of the above-identified application and under the provisions of 35 U.S.C. §119 and 37 C.F.R. §1.55, applicant(s) claim(s) the benefit of the following prior application(s):

Application(s) filed in: Japan
In the names of: KABUSHIKI KAISHA TOYOTA JIDOSHOKKI
Serial No(s): 2002-309278
Filing Date(s): October 24, 2002

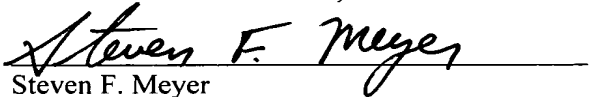
Application(s) filed in: Japan
In the names of: KABUSHIKI KAISHA TOYOTA JIDOSHOKKI
Serial No(s): 2003-202145
Filing Date(s): July 28, 2003

☒ Pursuant to the Claim to Priority, applicant(s) submits a duly certified copy of each of said foreign applications herewith.

Respectfully submitted,
MORGAN & FINNEGAN, L.L.P.

Dated: October 24, 2003

By:


Steven F. Meyer
Registration No. 35,613

Correspondence address:
MORGAN & FINNEGAN, L.L.P.
345 Park Avenue
New York, NY 10154-0053
(212) 758-4800 Telephone
(212) 751-6849 Facsimile

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2002年10月24日

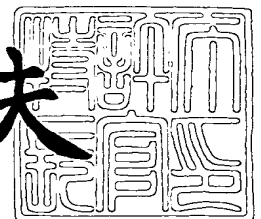
出願番号
Application Number: 特願2002-309278
[ST. 10/C]: [JP2002-309278]

出願人
Applicant(s): 株式会社豊田自動織機

2003年 9月 2日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



出証番号 出証特2003-3071716

【書類名】 特許願

【整理番号】 PY20021632

【提出日】 平成14年10月24日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H05B 33/26

【発明者】

 【住所又は居所】 愛知県刈谷市豊田町2丁目1番地 株式会社 豊田自動
 織機 内

 【氏名】 中川 敏

【発明者】

 【住所又は居所】 愛知県刈谷市豊田町2丁目1番地 株式会社 豊田自動
 織機 内

 【氏名】 竹内 万善

【発明者】

 【住所又は居所】 愛知県刈谷市豊田町2丁目1番地 株式会社 豊田自動
 織機 内

 【氏名】 長柄 良明

【特許出願人】

 【識別番号】 000003218

 【氏名又は名称】 株式会社 豊田自動織機

【代理人】

 【識別番号】 100068755

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 恩田 博宣

【選任した代理人】

 【識別番号】 100105957

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 恩田 誠

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 002956

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9721048

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 有機EL素子

【特許請求の範囲】

【請求項1】 陽極と、少なくとも発光層を含む有機層と、陰極とが基板上に順次積層され、かつ前記発光層の発光が前記基板と反対側から取り出される有機EL素子であって、

前記陰極は、金属、金属合金又は金属化合物を材料として透明に形成された電子注入層と、前記電子注入層の前記有機層に対向する面と反対側の面を覆い前記電子注入層を保護する役割を果たす金属又は金属合金により透明に形成された被覆層とから構成され、前記陰極の抵抗値が、前記陰極と同形状でかつ同位置に形成されたITO（インジウム錫酸化物）製の透明電極の抵抗値以下となるように形成されている有機EL素子。

【請求項2】 前記電子注入層を形成する材料の仕事関数が隣接する有機層の最低非占有分子軌道（LUMO）準位の絶対値以下である請求項1に記載の有機EL素子。

【請求項3】 前記電子注入層を形成する材料はアルカリ金属又はアルカリ土類金属である請求項1又は請求項2に記載の有機EL素子。

【請求項4】 前記電子注入層を形成する材料はカルシウムである請求項3に記載の有機EL素子。

【請求項5】 前記被覆層は前記電子注入層を形成する材料より抵抗率が小さな材料で形成されている請求項1～請求項4のいずれか一項に記載の有機EL素子。

【請求項6】 前記被覆層の材料は銀である請求項5に記載の有機EL素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は有機EL（エレクトロルミネッセンス）素子に係り、詳しくは発光層の発光が基板と反対側から取り出されるように構成された所謂トップエミッショ

ン型の有機EL素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

有機EL素子は、液晶ディスプレイの次にくるディスプレイの素子として注目されている。一般に、有機EL素子は、ガラス基板上にITO（インジウム錫酸化物）で構成された透明電極（陽極）を形成し、その透明電極上に発光層を含む有機層を形成し、さらに不透明な陰極を積層することによって形成され、発光層の発光をガラス基板側から取り出していた（所謂ボトムエミッション型）。陰極としては、リチウム、マグネシウム、カルシウム、アルミニウム等比較的工作関数の小さな金属や、金属酸化物、金属合金が使われている。

【0003】

そして、ボトムエミッション型の有機EL素子において、陰極が改良された有機EL素子として、陰極の構造をアルカリ金属を6モル%以上含む合金層と、その上にアルカリ金属元素を含まない厚さ50nm以上の難腐食性金属陰極層との2層構造としたものが提案されている（特許文献1参照。）。また、陰極としてアルカリ金属又は仕事関数2.9eV以下のアルカリ土類金属を該アルカリ金属と該アルカリ土類金属との総量で0.5～5at%含有する厚さ5～50nmの合金領域と、仕事関数3.0eV以上の金属からなる厚さ50～300nmの上部金属領域との2つの領域を設けたものも提案されている。前記合金領域及び上部金属領域は、合金領域が有機層側となるように順次形成され、当該陰極における酸素の存在濃度を1at%以下にした（特許文献2参照。）。

【0004】

また、発光層の発光をガラス基板と反対側から取り出す構成（所謂トップエミッション型）の有機EL素子も提案されている（例えば、特許文献3参照。）。特許文献3に記載された有機EL素子は、陽極に金属電極を使用し、陰極は極薄い（膜厚0.5～20nm）電子注入金属層と、透明導電層（膜厚200nmのIn-Zn-O系の透明導電膜）との積層構造となっている。

【0005】

【特許文献1】

特開平 4 - 2 1 2 2 8 7 号公報（明細書の段落 [0 0 2 2] ～ [0 0 4 3] 、
図 1 ）

【特許文献 2】

特開平 9 - 2 3 2 0 7 9 号公報（明細書の段落 [0 0 1 1] ～ [0 0 2 9] ）

【特許文献 3】

特開 2 0 0 1 - 4 3 9 8 0 号公報（明細書の段落 [0 0 1 4] ～ [0 0 1 5] 、
図 1 ）

【 0 0 0 6 】

【発明が解決しようとする課題】

有機 E L 素子を表示装置として使用する場合、その駆動方式としてパッシブマトリックス方式とアクティブマトリックス方式とがある。そして、アクティブマトリックス方式の方が有機 E L 素子に有利なことが多い。例えば、パッシブマトリックス方式に比較して、同じ発光輝度を得るために実際発光する輝度が低くて済むことがある。

【 0 0 0 7 】

しかしながら、アクティブマトリックス方式では、アクティブ駆動用素子（例えば、T F T（薄膜トランジスタ））を各画素毎（カラー表示の場合は R，G，B 用の各サブピクセル毎）に設ける必要がある。アクティブ駆動用素子を基板に形成した場合、ボトムエミッション型の有機 E L 素子ではアクティブ駆動用素子の配置面積分、開口率が減少するという問題がある。アクティブ駆動用素子を陰極上に形成することも考えられるが、アクティブ駆動用素子を形成する際の熱により有機層がダメージを受けるため実現が難しい。

【 0 0 0 8 】

また、透明電極を I T O 等の金属酸化物で形成する場合は、陽極を構成する透明電極の抵抗を低くする目的で、基板とともに透明電極の温度を高める工程（アニール工程）を必要とする。カラーフィルタや色変換層を用いる場合、カラーフィルタや色変換層の上にアクティブ駆動用素子を形成し、さらに有機 E L 素子を形成する必要がある。そして、前記アニール工程において、カラーフィルタ等が熱によりダメージを受けるのを避けるために、アニール温度に制約が加えられ、

十分な特性を持った透明電極が得られない可能性がある。また、アクティブ駆動用素子を形成する際、熱によりカラーフィルタ等がダメージを受け易いという問題もある。

【0009】

一方、トップエミッション型の有機EL素子では、基板上にアクティブ駆動用素子を形成した後、その上に有機EL素子を形成し、その後、カラーフィルタと組み合わせることが可能となる。従って、アクティブ駆動用素子を形成する際の熱によりカラーフィルタ等がダメージを受ける虞はない。

【0010】

しかし、トップエミッション型の有機EL素子では、有機層に対して基板と反対側に配置される電極（陰極）を透明に形成する必要がある。そして、陰極を透明で、かつ電極の抵抗を所定の値以下にするためには、例えば、特許文献3に記載されたように、陰極を極薄の電子注入金属層と、その十倍程度の厚さの金属酸化物製の透明電極層との2層構造とする必要がある。金属酸化物製の透明電極層はスパッタ法やイオンプレーティング法、CVD法により成膜され、これらの方法では成膜時に基板温度が200℃以上になるという問題がある。

【0011】

また、金属酸化物製の透明電極の抵抗値を有機EL素子に有効な値まで低減させるためには、透明電極の成膜後にアニールを行う必要がある。しかし、アニールの際に有機層がダメージを受ける虞があるため十分にアニールができず、駆動電圧の高電圧化の原因となっていた。また、スパッタ法などで透明電極を形成する際に、透明電極を構成する金属酸化物が有機層に直接積層されることにより有機層がダメージを受けるのを防止するため、有機層の上に無機の薄膜を蒸着で形成した後、透明電極を形成する方法もある。しかし、有機層と透明電極との間に無機の薄膜を形成すると、透過率が低下して発光層の発光の取り出し効率が低下する原因となる。

【0012】

また、プロセス的な問題として、透明電極の形成を蒸着で行うと、成膜速度が遅くなり、生産効率が落ちて製造コストが高くなるため、スパッタ法等が採用さ

れている。しかし、有機層の形成は蒸着で行われているため、有機層を形成した後、中間製品を透明電極形成用の別の装置へと搬送する必要が生じ、搬送中に有機層の表面に環境中のパーティクルが付着する虞がある。

【0013】

本発明の目的はトップエミッション型の有機EL素子において、陰極に有機層に悪影響を与える高温のアニールを必要とするITO等の金属酸化物の透明電極を形成する必要が無く、前記金属酸化物の透明電極の形成に起因する不具合をなくすることができる有機EL素子を提供することにある。

【0014】

【課題を解決するための手段】

前記の目的を達成するため、請求項1に記載の発明は、陽極と、少なくとも発光層を含む有機層と、陰極とが基板上に順次積層され、かつ前記発光層の発光が前記基板と反対側から取り出される有機EL素子である。前記陰極は、金属、金属合金又は金属化合物を材料として透明に形成された電子注入層と、前記電子注入層の前記有機層に対向する面と反対側の面を覆い前記電子注入層を保護する役割を果たす金属又は金属合金により透明に形成された被覆層とから構成されている。そして、前記陰極の抵抗値が、前記陰極と同形状でかつ同位置に形成されたITO（インジウム錫酸化物）製の透明電極の抵抗値以下となるように形成されている。ここで「透明」とは可視光の透過率が50%以上であることを意味する。

【0015】

この発明では、有機EL素子は所謂トップエミッション型に形成され、陰極を構成する電子注入層は金属、金属合金又は金属化合物で、被覆層は金属又は金属合金で透明に形成されている。電子注入層に金属化合物の一種である金属酸化物を使用する場合でも、従来の透明電極と異なり電子注入層を形成する際、有機層に悪影響を与える高温のアニールは不要である。なぜならば、陰極を構成する金属又は金属合金製の被覆層の抵抗率を小さくすることにより、電子注入層の抵抗率が多少大きくても陰極全体としての抵抗が小さくなるため、金属酸化物のアニールが不要となる。従って、従来の有機EL素子に使用されていた金属酸化物の

透明電極の形成に起因する不具合をなくすることができる。また、電子注入層及び被覆層の膜厚が薄く、成膜を蒸着で行っても生産性がさほど低下せず、スパッタ法等を使用する必要がない。従って、スパッタ法等の場合と異なり、成膜時に有機層がダメージを受けるのを防止する無機の薄膜を形成する必要がない。電子注入層に好適な材料は一般に反応性が高く、電子注入層のみで陰極を構成すると酸化等の劣化が進行し易いが、被覆層を設けることにより劣化が抑制される。

【0016】

請求項2に記載の発明は、請求項1に記載の発明において、前記電子注入層を形成する材料の仕事関数が隣接する有機層の最低非占有分子軌道（LUMO）準位の絶対値以下である。この発明では、電子注入層から有機層への電子の注入が良好に行われ、発光層での発光輝度を高めるのに役立つ。

【0017】

請求項3に記載の発明は、請求項1又は請求項2に記載の発明において、前記電子注入層を形成する材料はアルカリ金属又はアルカリ土類金属である。この発明では、他の材料で電子注入層を形成した場合に比較して、電子注入効率が高くなる。

【0018】

請求項4に記載の発明は、請求項3に記載の発明において、前記電子注入層を形成する材料はカルシウムである。この発明では、電子注入層がカルシウムで形成されているためその透過率が向上し、結果として輝度向上に役立つ。

【0019】

請求項5に記載の発明は、請求項1～請求項4のいずれか一項に記載の発明において、前記被覆層は前記電子注入層を形成する材料より抵抗率が小さな材料で形成されている。従って、この発明では、被覆層を電子注入層より厚くすることで陰極全体としての抵抗を下げることができ、電子注入層を被覆層より厚く形成した構成に比較して、酸化等の劣化が進行し易い電子注入層の保護効果が向上する。

【0020】

請求項6に記載の発明は、請求項5に記載の発明において、前記被覆層の材料

は銀である。この発明では、被覆層の材料に金属で最も抵抗率の小さな銀（Ag）が使用されているため、他の金属を使用した場合に比較して被覆層の膜厚が同じであれば、有機EL素子を駆動する際に必要な印加電圧を低くすることができる。また、印加電圧が同じ場合は、被覆層の膜厚を薄くでき、陰極全体としての透過率を高くして、発光層の発光の取り出し効率を高めることができる。

【0021】

【発明の実施の形態】

（第1の実施の形態）

以下、本発明を具体化した第1の実施の形態を図1に従って説明する。図1は有機EL素子の模式断面図である。

【0022】

図1に示すように、有機EL素子10は、基板11上に陽極12と、少なくとも発光層を含む有機層13と、陰極14とが順次積層されて形成されている。基板11は透明なガラス基板よりなり、その上（図1では基板11の上面）に金属製の陽極12が形成されている。陽極12は可視光に対する反射性を有している。陰極14は透明に形成されている。即ち、有機EL素子10は、発光層の発光が基板11と反対側から取り出される所謂トップエミッション型の有機EL素子である。

【0023】

陽極12はクロムをスパッタ法で成膜して例えば200nmの厚さに形成された後、フォトリソグラフ工程によるエッチングでパターンニングされている。

陽極12上には、正孔（ホール）注入層15、正孔輸送層16、発光層17からなる有機層13が、陽極12側から前記の順で積層形成されている。正孔注入層15は、この実施の形態では、銅フタロシアニン（CuPc）よりなり、膜厚10nmの層になるように形成されている。正孔輸送層16は末端フェニルのメタ位にメチル基を持つトリフェニルアミンの4量体（TPTE）よりなり、膜厚10nmの層になるように形成されている。発光層17は8-キノリノール誘導体の金属錯体のトリス（8-キノリノール）アルミニウム（Alq3）よりなり、膜厚65nmの層になるように形成されている。正孔注入層15、正孔輸送層

16 及び発光層 17 はいずれも 5×10^{-5} Pa 以下の圧力において蒸着により成膜されている。

【0024】

陰極 14 は、金属、金属合金又は金属化合物により透明に形成された電子注入層 18 と、電子注入層 18 の有機層 13 に対向する面と反対側の面を覆い、電子注入層 18 を保護する役割を果たす金属又は金属合金により透明に形成された被覆層 19 とから構成されている。この実施の形態では、電子注入層 18 及び被覆層 19 とともに極薄い金属層で透明に形成されている。透明とは可視光の透過率が 50% 以上を意味する。また、極薄いと 50 nm 以下を意味する。そして、陰極 14 は、その抵抗値が、前記陰極 14 と同形状でかつ同位置に形成された ITO 製の透明電極の抵抗値以下となるように形成されている。

【0025】

この実施の形態では、電子注入層 18 はアルカリ土類金属のカルシウム (Ca) により形成され、被覆層 19 は銀 (Ag) により形成されている。電子注入層 18 及び被覆層 19 も 5×10^{-5} Pa 以下の圧力において蒸着により成膜されている。即ち、この実施の形態の有機 EL 素子 10 は陽極 12 上に順次積層形成された正孔注入層 15 から被覆層 19 までは全て蒸着により成膜されている。

【0026】

電子注入層 18 をカルシウムで形成する場合、膜厚は 5 ~ 50 nm の範囲が好ましい。この範囲であれば、透過率が 50% より大きくなり、シート抵抗はそれほど大きくなる。被覆層 19 を銀で形成する場合、膜厚は 5 ~ 20 nm、好ましくは 7 ~ 11 nm の範囲とする。5 nm より薄いと良好な層を成膜するのが難しく、20 nm より厚いと可視光の透過率が不十分となる。膜厚が 7 ~ 11 nm の範囲であれば、被覆層 19 の透過率は 50% より大きくなり、シート抵抗はそれほど大きくなる。

【0027】

電子注入層 18 を形成するカルシウムの仕事関数は 2.9 eV であり、電子注入層 18 に隣接する有機層としての発光層 17 を構成する Alq3 の最低非占有分子軌道 (LUMO) 準位は約 -3.1 eV である。即ち、この実施の形態では

、電子注入層 18 を形成する金属（カルシウム）の仕事関数が隣接する有機層（発光層 17）の LUMO 準位の絶対値以下である。また、銀は金属元素中で最も抵抗率が小さな元素であるため、被覆層 19 は電子注入層 18 を形成する金属より抵抗率が小さな材料で形成されている。

【0028】

なお、有機 EL 素子 10 は陽極 12、有機層 13 及び陰極 14 が、陽極 12 及び陰極 14 の電極取り出し側部分（いずれも図示せず）を露出させた状態で、有機層 13 が外気と接しないように、ガラスカバー（図示せず）で封止されている。

【0029】

次に前記のように構成された有機 EL 素子 10 の製造方法を説明する。

有機 EL 素子 10 を製造する際は、先ず基板 11 上に陽極 12 を形成する。陽極 12 は、基板 11 上にスパッタ法によりクロムを膜厚 200 nm となるように成膜する。次に、フォトリソグラフ工程においてエッチングでパターンニングを行う。

【0030】

次に有機層 13 を構成する正孔注入層 15、正孔輸送層 16、発光層 17 を 5×10^{-5} Pa 以下の圧力において蒸着によりそれぞれ所定の膜厚となるように順次成膜する。次に陰極 14 を構成する電子注入層 18 及び被覆層 19 を、有機層 13 の形成時と同様に 5×10^{-5} Pa 以下の圧力において蒸着によりそれぞれ所定の膜厚となるように順次成膜する。即ち、有機層 13 及び陰極 14 を構成する各層は同じ蒸着装置内で成膜される。そして、最後に陽極 12、有機層 13 及び陰極 14 がガラスカバーで封止される。ガラスカバーの基板 11 に対する取り付け作業は例えば窒素ガス雰囲気で行われる。

【0031】

次に前記のように構成された有機 EL 素子 10 の作用を説明する。

有機 EL 素子 10 の陽極 12 及び陰極 14 間に直流電圧が印加されると、陽極 12 から正孔注入層 15 を介して正孔輸送層 16 に正孔が注入され、正孔輸送層 16 に注入された正孔は正孔輸送層 16 の TPE により、発光層 17 まで輸送

される。一方、陰極 14 を構成する電子注入層 18 から発光層 17 に電子が注入される。そして、発光層 17 において正孔と電子が再結合し、再結合のエネルギーが有機分子の一重項励起状態を介して放出されることにより、発光する。

【0032】

陰極 14 が電子注入層 18 と被覆層 19 との 2 層構造で、両層とも金属層で透明に形成されている。従って、陰極 14 に ITO 等の金属酸化物の透明電極を形成する必要が無く、前記金属酸化物の透明電極の形成に起因する不具合をなくすることができる。

【0033】

前記のように構成された有機 EL 素子 10（実施例 1）と、有機 EL 素子 10 の陽極 12 を膜厚 200 nm の ITO 層に、陰極 14 を膜厚 150 nm のアルミニウム層にそれぞれ変更した点を除いて同じ構成の有機 EL 素子（比較例 1）とについて、11mA/cm² で発光特性をそれぞれ測定した。結果を表 1 に示す。

【0034】

【表 1】

	最大強度 波長(nm)	輝度 (cd/m ²)	電圧 (V)	パワー効率 (lm/w)	電流効率 (cd/A)
実施例 1	540	1009.6	5.1	5.7	9.2
比較例 1	541	1005.2	5.3	5.4	9.1

表 1 に示すように、実施例 1 の有機 EL 素子 10 は比較例 1 の有機 EL 素子と比較して、印加電圧が若干低く、輝度、パワー効率及び電流効率の点で優れていた。従って、陰極 14 を金属で構成し、透明性を持たすためにその膜厚を極薄く形成しても、従来のボトムエミッション型の構成の有機 EL 素子と同程度以下の印加電圧で同等以上の発光特性を有する有機 EL 素子 10 が得られることが確認された。

【0035】

この実施の形態では以下の効果を有する。

- (1) トップエミッション型の有機 EL 素子 10 は、光取り出し側に配設さ

れた陰極 14 が、金属により透明に形成された電子注入層 18 と、電子注入層 18 の有機層 13 に対向する面と反対側の面を覆い、電子注入層 18 を保護する役割を果たす金属により透明に形成された被覆層 19 とから構成されている。そして、陰極 14 の抵抗値が、前記陰極 14 と同形状でかつ同位置に形成された ITO 製の透明電極の抵抗値以下となるように形成されている。従って、陰極 14 に ITO 等の金属酸化物の透明電極を形成する必要が無く、前記金属酸化物の透明電極の形成に起因する不具合をなくすることができる。例えば、ITO 等で透明な陰極を形成する場合に必要な高温でのアニールが不要となり、アニールの際に有機層 13 がダメージを受ける虞がない。また、電子注入層 18 及び被覆層 19 の膜厚が薄く、成膜を蒸着で行っても生産性がさほど低下せず、スパッタ法等を使用する必要がない。従って、スパッタ法等の場合と異なり、成膜時に有機層 13 がダメージを受けるのを防止する無機の薄膜を形成する必要がなく、無機膜の存在による透過率の低下を回避できる。また、電子注入層 18 に好適な材料は一般に反応性が高く、電子注入層 18 のみで陰極 14 を構成すると酸化等の劣化が進行し易いが、被覆層 19 を設けることにより劣化が抑制される。

【0036】

(2) 電子注入層 18 を形成する材料の仕事関数が隣接する有機層 13 の LUMO 準位以下であるため、電子注入層 18 から有機層 13 への電子の注入が良好に行われ、発光層 17 での発光輝度を高めるのに役立つ。

【0037】

(3) 電子注入層 18 を形成する材料はアルカリ土類金属であるため、アルカリ金属及びアルカリ土類金属以外の金属で電子注入層 18 を形成した場合に比較して、電子注入効率が高くなる。

【0038】

(4) 電子注入層 18 を形成する材料としてカルシウムが使用されているため、他の金属に比較して電子注入層 18 の透過率が向上し、結果として輝度向上に役立つ。

【0039】

(5) 被覆層 19 は電子注入層 18 より抵抗率が小さな材料で形成されてい

るので、被覆層 19 を電子注入層 18 より厚くすることで陰極 14 全体としての抵抗を下げるができる。従って、電子注入層 18 を被覆層 19 より厚く形成した構成に比較して、酸化等の劣化が進行し易い電子注入層 18 の保護効果が向上する。

【0040】

(6) 被覆層 19 の材料は銀である。即ち、被覆層 19 の材料に金属で最も抵抗率の小さな銀が使用されているため、他の金属を使用した場合に比較して被覆層 19 の膜厚が同じであれば、有機 EL 素子 10 を駆動する際に必要な印加電圧を低くすることができる。また、印加電圧が同じ場合は、被覆層 19 の膜厚を薄くでき、陰極 14 全体としての透過率を高くして、発光層 17 の発光の取り出し効率を高めることができる。

【0041】

(7) 陽極 12 と正孔輸送層 16 との間に正孔注入層 15 が設けられているため、陽極 12 上に直接正孔輸送層 16 を形成する構成に比較して、正孔輸送層 16 への正孔の注入効率が高くなる。

【0042】

(8) 電子注入層 18 の材料であるカルシウムと、被覆層 19 の材料である銀はいずれも蒸着による成膜が簡単なため、有機層 13 から一貫して同じ蒸着装置で陰極 14 の形成を行うことができ、生産性を向上できる。また、有機層 13 を形成した後、中間製品を陰極 14 を形成するために別の装置へと搬送する必要がなく、搬送中に有機層 13 の表面に環境中のパーティクルが付着する虞がない。

【0043】

(第 2 の実施の形態)

次に第 2 の実施の形態を図 2 に従って説明する。この実施の形態では、有機層の構成が前記実施の形態と異なり、その他の構成は同じである。前記実施の形態と同様の部分については同一の符号を付し、その詳細な説明は省略する。

【0044】

図 2 に示すように、有機 EL 素子 20 は、基板 11 上に陽極 12 と、有機層 2

1 と、陰極 14 とが順次積層されて形成されている。

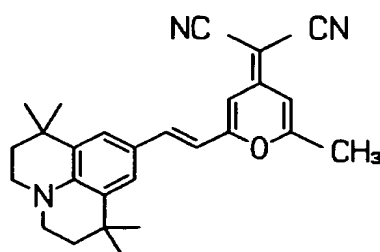
有機層 21 は、正孔注入層 15、正孔輸送層 16 及び第 1 発光層 22a、第 2 発光層 22b 及び第 3 発光層 22c の 5 層で構成され、3 層構成の発光層 22 が正孔輸送層 16 上に積層形成されている。発光層 22 は、赤色発光層としての第 1 発光層 22a と、青色発光層としての第 2 発光層 22b と、緑色発光層としての第 3 発光層 22c とが正孔輸送層 16 上に順次積層されて白色発光層を構成している。

【0045】

第 1 発光層 22a は、TPTE をホストとし、DCJT をドーパントとして膜厚 5 nm に形成されている。DCJT は TPTE に対して 0.5 wt % になるように含有されている。DCJT は次の化学式で表される。

【0046】

【化 1】



DCJT

第 2 発光層 22b は、4,4-Bis(2,2-diphenyl-ethen-1-yl)-biphenyl (DPVBi) をホストとし、4,4'-(Bis(9-ethyl-3-carbazovinylen)-1,1'-biphenyl (BCzVBi) をドーパントとして膜厚 30 nm に形成されている。BCzVBi は DPVBi に対して 5.0 wt % になるように含有されている。

【0047】

第 3 発光層 22c は、Alq3 をホストとし、10-(2-Benzothiazolyl)-2,3,6,7-tetrahydro-1,1,7,7-tetramethyl-1H,5H,11H-[1]benzopyrano[6,7,8-ij]quinolizin-11-one (C545T) をドーパントとして膜厚 20 nm に形成されている。C545T は Al

q 3 に対して 1.0 wt % になるように含有されている。

【0048】

この実施の形態の有機 EL 素子 20 も前記実施の形態の有機 EL 素子 10 と同様に、基板 11 上に金属製の陽極 12 を形成した後、有機 EL 素子 20 及び陰極 14 が蒸着により順次形成される。

【0049】

前記のように構成された有機 EL 素子 20（実施例 2）と、有機 EL 素子 20 の陽極 12 を膜厚 200 nm の ITO 層に、陰極 14 を膜厚 200 nm のアルミニウム層にそれぞれ変更した点を除いて同じ構成の有機 EL 素子（比較例 2）とについて、11 mA/cm² で発光特性をそれぞれ測定した。結果を表 2 に示す。

【0050】

【表 2】

	最大強度波長(nm)	輝度 (cd/m ²)	電圧 (V)	パワー効率 (lm/w)	電流効率 (cd/A)
実施例 2	460,515,600	1392.3	7.8	5.1	12.6
比較例 2	460,520,595	1305.0	7.5	5.0	11.9

表 2 に示すように、実施例 2 の有機 EL 素子 20 は比較例 2 の有機 EL 素子と比較して、印加電圧が若干高いが、輝度、パワー効率及び電流効率の点で優れていた。従って、発光層の構成を変えても、従来のボトムエミッション型の構成の有機 EL 素子と同等以上の発光特性を有する有機 EL 素子 20 が得られることが確認された。

【0051】

この実施の形態では第 1 の実施の形態の（1）～（8）と同様の効果を有する他に、次の効果を有する。

（9） 発光層 22 は白色発光を行うため、有機 EL 素子 20 をカラーフィルタと組み合わせることで、フルカラーの表示装置に使用できる。

【0052】

実施の形態は前記に限らず、例えば次のように構成してもよい。

○ 電子注入層 18 は金属、金属合金又は金属化合物により透明に形成されていけばよいが、金属及び金属合金の方が金属化合物に比較して一般に抵抗率が小さいため、抵抗の点からは金属及び金属合金が好ましい。

【0053】

○ アルカリ金属 (Li、Na、K、Rb、Cs) 及びアルカリ土類金属 (Ca、Ba、Sr、Ra) が他の金属に比較して仕事関数が小さいため好ましい。例えば、入手し易いアルカリ金属及びアルカリ土類金属の仕事関数 (単位 eV) は、Li: 2.93、K: 2.28、Cs: 1.95、Ca: 2.9 であり、入手し易い他の金属の仕事関数 (単位 eV) は、Al: 4.28、Ag: 4.26、Cr: 4.5、Cu: 4.65、Mg: 3.36、Mo: 4.6 である。また、仕事関数が小さい金属化合物を電子注入層 18 の材料として使用してもよい。金属化合物では仕事関数の値に大きな幅がある。比較的工作関数の小さな金属化合物の仕事関数 (単位 eV) は次の値となる。NdC: 2.24~4.10、TaC: 3.05~3.98、ThO₂: 1.66~6.32、TiC: 2.35~4.09、ZrC: 2.18~4.22

○ 電子注入層 18 を形成する材料は、その仕事関数が隣接する有機層 13 の LUMO 準位の絶対値以下であることが好ましい。アルカリ金属及びアルカリ土類金属はこの条件を満たす。

【0054】

○ 仕事関数の小さな金属は化学的に不安定なため単独で使用するより、合金として使用の方が安定性が増す場合が多いので、合金で電子注入層 18 を形成してもよい。しかし、金属単体の方が合金に比較して電子注入が効率よく行われるので金属単体で電子注入層 18 を形成する方が電子注入の効率の点からは好ましい。電子注入層 18 は表面を被覆層 19 により覆われているため、仕事関数の小さな金属単独で電子注入層 18 を形成しても被覆層 19 により保護される。

【0055】

○ 電子注入層 18 は必ずしも有機層 13 の全面にほぼ均一に形成されていれば、均一な層を成さずにピンホール等があってもよい。電子注入層 18 は被覆層 19 に被覆されているため、被覆層 19 をピンホールのない均一な層に形成する

ことで、電子注入層 18 にピンホールがあっても支障はない。

【0056】

○ 被覆層 19 は電子注入層 18 を形成する材料より抵抗率が小さな材料で形成するのが好ましい。アルカリ金属とアルカリ土類金属の抵抗率を比較するとアルカリ土類金属の方が小さい。例えば、カルシウムの抵抗率は $3.91 \times 10^{-6} \Omega \text{m}$ で、カリウムの抵抗率は $6.15 \times 10^{-6} \Omega \text{m}$ 、リチウムの抵抗率は $8.55 \times 10^{-6} \Omega \text{m}$ である。抵抗率が小さく、安定な金属としては銀 ($1.59 \times 10^{-6} \Omega \text{m}$)、銅 ($1.67 \times 10^{-6} \Omega \text{m}$)、アルミニウム ($2.65 \times 10^{-6} \Omega \text{m}$)、金 ($2.35 \times 10^{-6} \Omega \text{m}$) 等が挙げられる。

【0057】

○ 有機層 13, 21 の構成は、第 1 及び第 2 の実施の形態のように、正孔注入層 15、正孔輸送層 16 及び発光層 17, 22 の 3 種類で構成するものに限らない。例えば、正孔注入層 15 及び正孔輸送層 16 の一方を無くしたり、両方をなくしてもよい。また、正孔注入材料と正孔輸送材料とを混合した層を陽極 12 と発光層 17, 22 との間に設けてもよい。また、発光層 17, 22 と電子注入層 18 との間に電子輸送層を設けてもよい。発光層 17, 22 のみからなるものであってもよい。

【0058】

○ 正孔注入層 15、正孔輸送層 16 及び発光層 17, 22 を形成する有機材料は第 1 及び第 2 の実施の形態に記載されたものに限らない。例えば、正孔注入材料として TPTE に代えて、トリフェニルアミンの二量体 (TPD) や TPD の二つのフェニル基をナフチル基に変えた化合物としてもよい。また、電子輸送材料としては、例えば、オキサジアゾールやトリアゾール構造を含む化合物あるいはトリニトロフルオレノン (TNF) がある。発光材料も前記実施の形態の材料に限らず使用できる。

【0059】

○ 陽極 12 を形成する材料はクロムに限らず、他の金属や ITO 等の透明導電材料で形成してもよい。陽極の場合は仕事関数が高いものの方が正孔を注入し易いため好ましい。仕事関数 (単位 eV) は、クロムが 4.5、ニッケルが 5

． 15、金が5．1、パラジウムが5．55、ITOが4．8、銅が4．65である。

【0060】

○ 陽極12は光に対する反射性を有していなくてもよい。しかし、反射性を有する方が発光層17、22から陽極12側に向かった光が陽極12で反射されて陰極14側から出射されるため、陽極12の反射光を利用しない形態に比較して、陰極14から出射する光量を多くすることができる。従って、発光層17、22の発光量を少なくしても必要な光量を得ることができ、消費電力量を低減することができる。

【0061】

○ 陽極12、有機層13及び陰極14をガラスカバーで封止する代わりに、パッシベーション膜で封止してもよい。パッシベーション膜としては水分や酸素等のガスの透過率の小さな他の材料、例えば窒化ケイ素 SiN_x 、酸化ケイ素 SiO_x 、ダイヤモンド・ライク・カーボンが使用される。また、異なる材料の薄膜を積層してパッシベーション膜を形成してもよい。

【0062】

○ 基板11は透明でなくてもよい。例えば金属、セラミックス等の硬質材を使用してもよく、樹脂等のフレキシブル基板を使用してもよい。

以下の技術的思想（発明）は前記実施の形態から把握できる。

【0063】

(1) 請求項6に記載の発明において、前記被覆層は厚さが7～11nmである。

(2) 陽極と、少なくとも発光層を含む有機層と、陰極とが基板上に順次積層され、かつ前記発光層の発光が前記基板と反対側から取り出される有機EL素子の製造方法であって、基板上に陽極を形成した後、蒸着装置により少なくとも発光層を含む有機層を積層形成し、次に前記蒸着装置により金属、金属合金又は金属化合物を材料として電子注入層を透明となる膜厚に形成し、次に前記電子注入層を覆うように前記電子注入層を保護する役割を果たす被覆層を金属又は金属合金で透明となる膜厚に形成する有機EL素子の製造方法。

【 0 0 6 4 】

【発明の効果】

以上詳述したように、請求項 1 ～請求項 6 に記載の発明によれば、トップエミッション型の有機 E L 素子において、陰極に有機層に悪影響を与える高温のアニールを必要とする I T O 等の金属酸化物の透明電極を形成する必要が無く、前記金属酸化物の透明電極の形成に起因する不具合をなくすることができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 第 1 の実施の形態の有機 E L 素子の模式図。

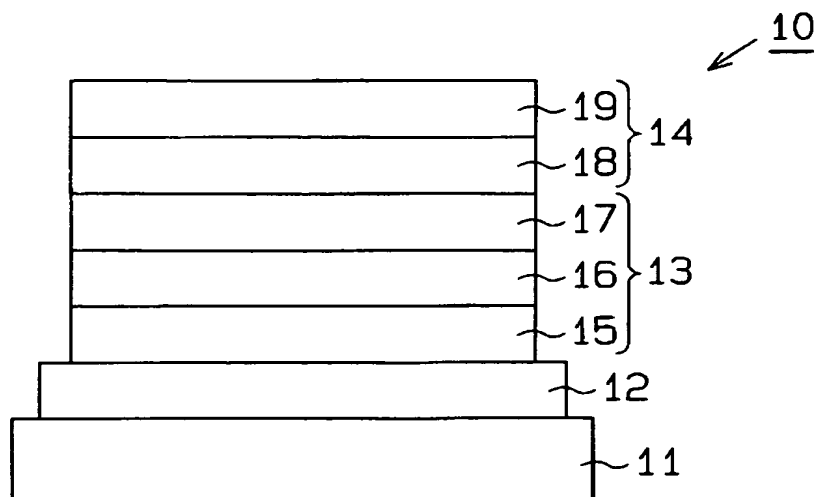
【図 2】 第 2 の実施の形態の有機 E L 素子の模式図。

【符号の説明】

1 0, 2 0 …有機 E L 素子、1 1 …基板、1 2 …陽極、1 3, 2 1 …有機層、
1 4 …陰極、1 7, 2 2 …発光層、1 8 …電子注入層、1 9 …被覆層。

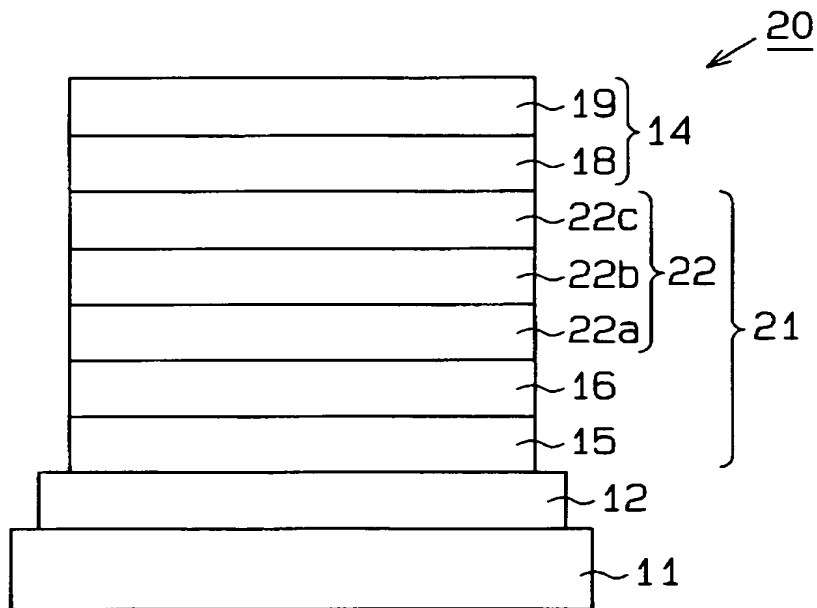
【書類名】 図面

【図 1】



10-有機EL素子 11-基板 12-陽極 13-有機層
14-陰極 17-発光層 18-電子注入層 19-被覆層

【図 2】



20-有機EL素子 21-有機層21 22-発光層

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 トップエミッション型の有機 E L 素子において、陰極に有機層に悪影響を与える高温のアニールを必要とする I T O 等の金属酸化物の透明電極を形成する必要が無く、前記金属酸化物の透明電極の形成に起因する不具合をなくす。

【解決手段】 有機 E L 素子 10 は、陽極 12 と、発光層 17 む有機層 13 と、陰極 14 とが基板 11 上に順次積層され、かつ発光層 17 の発光が基板 11 と反対側から取り出されるように構成されている。陰極 14 は、アルカリ土類金属のカルシウムにより透明に形成された電子注入層 18 と、電子注入層 18 の有機層 13 に対向する面と反対側の面を覆い、電子注入層 18 を保護する役割を果たす金属（銀）により透明に形成された被覆層 19 とから構成されている。そして、陰極 14 の抵抗値が、前記陰極 14 と同形状でかつ同位置に形成された I T O （インジウム錫酸化物）製の透明電極の抵抗値以下となるように形成されている。

【選択図】 図 1



特願 2 0 0 2 - 3 0 9 2 7 8

出 願 人 履 歷 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 3 2 1 8]

1 . 変更年月日

2 0 0 1 年 8 月 1 日

[変更理由]

名称変更

住 所

愛知県刈谷市豊田町 2 丁目 1 番地

氏 名

株式会社豊田自動織機